



TITLE:

ヘリウムの臨界光散乱(review)(「ヘリウムの物性-光散乱を中心に-」,物性研究所短期研究会報告)

AUTHOR(S):

大林, 康二; 生嶋, 明

CITATION:

大林, 康二 ...[et al]. ヘリウムの臨界光散乱(review)(「ヘリウムの物性-光散乱を中心に-」,物性研究所短期研究会報告). 物性研究 1974, 21(4): G10-G21

ISSUE DATE:

1974-01-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/88714>

RIGHT:

で異った方向に散乱された光の line width function の比を示した。これから新しい line width function を使った方が実験事実をよりよく説明できる事がわかる。尚粘性係数の異常性そのものについても理論式

$$\Delta\eta/\eta \simeq A |\ln \epsilon| \quad A = 8\nu/15\pi^2 \quad |\epsilon| \gtrsim 10^{-12} \quad (24)$$

は種々異った実験の結果 $A \sim 0.030, 0.033, 0.035$ をよく説明する。

以上のべた場合は2次の摂動計算がよい第零近似を与えた場合であるが磁性体、液体ヘリウムの λ 転移等では第零近似を得るのに既に(18式)のような非線型微積分方程式を解かねばならず且つこの時は line shape がローレンツ型にならない事が期待されるので問題は一桁難かしくなる。液体ヘリウムの λ 点における臨界光散乱の実験が出始めた現在これら難しい問題も実験、理論両方面から段々と解明されて行く事が望まれる。

最後に新しい型の臨界散乱として物質が一つの非平衡定常状態から他のより対称性の低い定常状態に遷移する時に起るゆらぎの問題がある。一つがよく知られた例は水平な液層に下から熱を加えてやるとある臨界点で対流がおこりその近傍で強い臨界揺動が生ずると云う理論 (Zaitsev & Shliomis, Soviet Phys. J. E. T. P. 32, 88(1971), J. P. Boon, Phys. Chem. of Liquids 3, 157(1972)) があるがこれが光散乱で捉えられたと云う話を聞かない。日本の実験家がこの方面で先鞭をつけられる事を期待してこの報告を終わりたい。

ヘリウムの臨界光散乱 (review)

東大物性研 大林康二, 生嶋 明

2次相転移の臨界点近傍では、オーダー・パラメターの相関距離 ξ が、

$$\xi = \xi_0 \epsilon^{-\nu} \quad (1)$$

で発散する。ここで、 $\epsilon \equiv T/|T - T_c|$ で、 T_c は臨界温度。ヘリウムの場合、 ξ_0 は

ほぼ原子間距離のオーダーである。光散乱を実験技術として用いると、散乱ベクトルを k として、 $k\xi \gg 1$ の critical region と、 $k\xi \ll 1$ の hydrodynamic region の両領域での、静的並びに動的臨界現象の測定が可能である。ヘリウムの示す臨界点には、液相-気相臨界点、ラムダ点移点、 $^4\text{He}-^3\text{He}$ 混合液の tri-critical point がある。これらの、現在までに得られている結果について述べる。

液相-気相臨界点

レーザーを用いて、レーリー散乱の実験を行うと、散乱ベクトル k をもつ散乱光の電場ベクトルは、散乱体の波数ベクトル k をもつ誘電率のゆらぎ $\delta\epsilon(k, t)$ に比例し、誘電率は密度に比例するので、

$$E_s(k, t) \propto \delta\epsilon(k, t) \propto \delta\rho(k, t) \quad (2)$$

の比例関係が成り立つ。従って、散乱光強度の角度依存性及び時間相関の測定によって、液相-気相転移のオーダー・パラメータである密度のゆらぎの空間相関及び時間相関関数を決定する事ができる。密度のゆらぎの空間相関関数を、

$$\langle \delta\rho(0) \delta\rho(r) \rangle \sim e^{-r/\xi} / r^{1+\eta} \quad (3)$$

とすると、散乱光強度は次のようになる、¹⁾

$$\begin{aligned} I(k) \propto \chi(k) &= \frac{\chi(0)}{(1 + k^2 \xi^2)^{1-\eta/2}} \\ &= \frac{\chi_0 \epsilon^{-\gamma}}{(1 + k^2 \xi_0^2 \epsilon^{-2\nu})^{1-\eta/2}} \end{aligned} \quad (4)$$

散乱ベクトル k は、散乱角 θ と、

$$k = \frac{4\pi}{\lambda_m} \sin \frac{\theta}{2} \quad (5)$$

で結びつく。 λ_m は、物質中のレーザーの波長。 $\chi(k)$ は generalized susceptibility, γ と η は臨界指数である。散乱角 θ を変化させて、散乱強度の温度変化を求めれば、空間

相関関数が決定できる。

レーザを用いた光散乱の実験は, 光のコヒーレンスを用いて, 動的臨界現象が研究出来る点に有効性がある。散乱光電場ベクトルの時間相関は, (2)式より, 散乱体の密度のゆらぎの時間相関に比例する,

$$\begin{aligned} \langle E_S^*(k, 0) E_S(k, t) \rangle &\propto \langle \delta \rho^*(k, 0) \delta \rho(k, t) \rangle. \\ &\propto e^{-\Gamma t}. \end{aligned} \quad (6)$$

ここでスペクトル巾 Γ は,

$$\Gamma = D_T k^2 = \frac{A}{\rho C_p} k^2. \quad (7)$$

D_T , A , C_p はそれぞれ, 熱拡散率, 熱伝導度, 定圧比熱を示す。巾 Γ は, singular part Γ_s と, regular part Γ_r の和である,²⁾

$$\Gamma = \Gamma_s + \Gamma_r. \quad (8)$$

Γ_r は, 熱伝導度の regular part A_r によって,

$$\Gamma_r = \frac{A_r}{\rho C_p} k^2 \quad (9)$$

と表わされる。singular part は,

$$\Gamma_s = \left[\frac{A_s}{\rho (C_p)_s} k^2 \right] \left[\frac{(C_p)_s}{C_p} \right] \quad (10)$$

として, Kawasaki の式³⁾

$$\Gamma_k \equiv \frac{A_s}{\rho (C_p)_s} k^2 = \frac{k_B T}{6 \pi \eta^* \xi^3} K(k \xi) \quad (11)$$

で与えられる。ここで,

$$K(x) = \frac{3}{4} [1 + x^2 + (x^3 - x^{-1}) \arctan x]. \quad (12)$$

(11)式は, hydrodynamic region では, (7)式のように, k^2 の波数ベクトル依存性を与えるが, $k \xi \gg 1$ の critical region においては,

$$\Gamma_k = \frac{k_B T}{16 \eta^*} k^3 \quad (13)$$

になる。(11)式で η^* は high-frequency shear viscosity と呼ばれる。臨界点近傍においては、粘性は、regular part η_r と、非常に小さい singular part η_s の和であって、 η^* は、 $\eta_r < \eta^* < \eta_r + \eta_s$ の範囲にある。 η_s は、通常の測定温度範囲では小さいので、 $\eta^* \equiv \eta_r$ が期待される。

臨界点近傍のゆらぎの統計性も重要である。平均場近似を用いると、臨界点近傍で自由エネルギーは、

$$F(\delta\rho_k) = F_0 - a|\delta\rho_k|^2 - b|\delta\rho_k|^4 - c|\nabla(\delta\rho_k)|^2 - \dots \quad (14)$$

と表わされる。ゆらぎの確率分布は、

$$W(\delta\rho_k) \sim e^{-F(\delta\rho_k)/k_B T} \quad (15)$$

で表わされる。 $|\delta\rho_k|^2 \sim |\delta\epsilon_k|^2 \sim I_s$ (I_s : 散乱光強度) より、(15)は強度の確率分布を表わす式になる。(14)式の a は、等温圧縮率に逆比例していて、臨界点の極く近傍においては、非常に小さくなる。この場合(14)式右近第3項がゆらぎを決定する可能性があり、統計性がGaussianからずれる。所で、光散乱の実験の場合、波数ベクトル k が有限のゆらぎを観測しているので、(14)式第4項が $ck^2|\delta\rho_k|^2$ のGaussian的な寄与をする。

実験では、強度の測定は、光電子増倍管からの出力パルスを、光子計数する。時間相関関数は、光子相関法を用いて測定する。⁴⁾ 散乱光の統計性がGaussianの場合、散乱光の強度の相関は、

$$\langle I_s(t) I(0) \rangle \propto \langle I(0) \rangle^2 (1 + e^{-2\Gamma t}) \quad (16)$$

で表わされる。これより、 Γ を求める。統計性の測定は、光子統計法を用いる。これは、サンプル時間 T の中に、光子パルスが n 個観測される確率 $P(n, t)$ を、 n を変数として求める。 T が、ゆらぎの緩和時間 $\tau_R \equiv 1/2\Gamma$ よりも充分短かければ、ゆらぎがGaussianであれば

$$P(n, T) = \frac{1}{1 + \langle n \rangle_T} \left(\frac{\langle n \rangle_T}{1 + \langle n \rangle_T} \right)^n \quad (17)$$

で与えられる⁵⁾ geometrical 分布になる。ここで $\langle n \rangle_T$ は, T の時間内に入る平均の光子パルス数である。 $T \gtrsim \tau_R$ であれば, 散乱体のゆらぎの情報は, ならされてしまっ
て, レーザ光源の分布である, ポアソン分布が観測される。

ここで, ^3He の臨界点近傍での測定結果について述べる。⁶⁾ 第1図に, $T > T_c$ の
強点の測定結果を示す。実線は, 計算機を用いて出した(4)式の best-fit の曲線である。
 $T < T_c$ についても同様の計算により, 次の値がえられる。

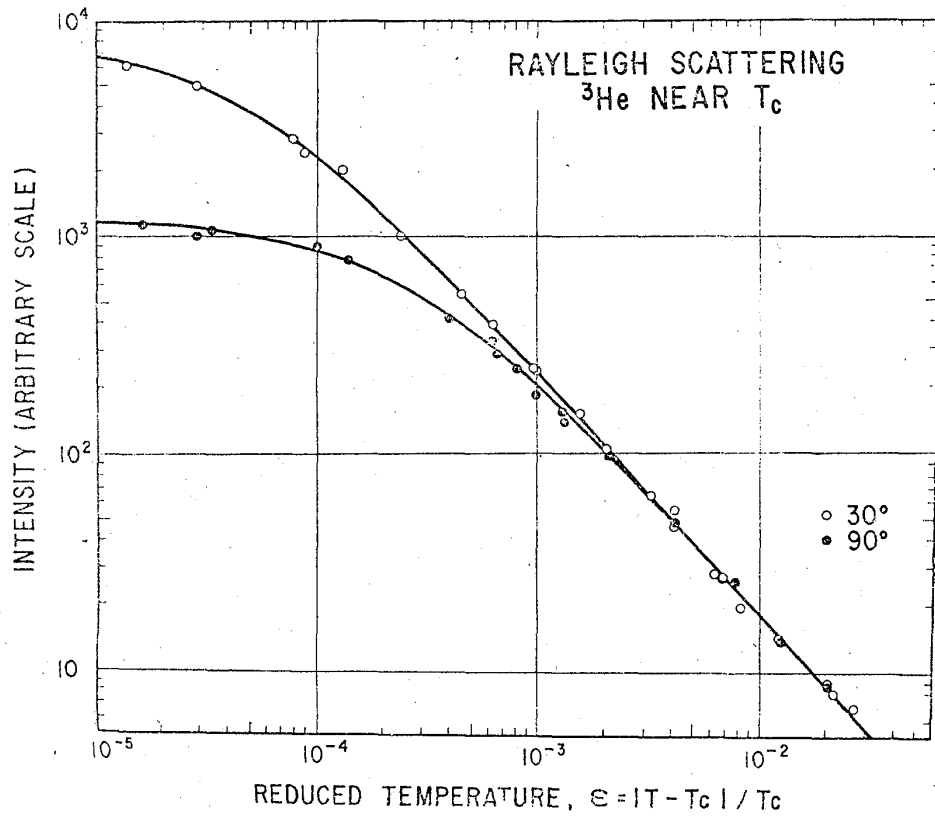


Fig. 1

$$\begin{cases} r = 1.14 \pm 0.05 \\ \nu = 0.59 \pm 0.04 \\ \xi_0 = 4.6 \pm 1.9 \text{ \AA} \end{cases} \quad (T > T_c) \quad (18)$$

$$\begin{cases} r' = 1.15 \pm 0.05 \\ \nu' = 0.67 \pm 0.1 \\ \xi_{\pm} = 4.0 \pm 3 \text{ A}^{\circ} \end{cases} \quad (T < T_c) \quad (18)$$

がえられる。 η の値は小さく、0から0.2まで変化させても、 r , ν , ξ_0 の値は、それぞれ0.4%, 1.5%, 1.4%しか変化せず、この実験では決定できない。従って、ここでは、不等式⁷⁾ $\eta \geq (5 - \delta) / (\delta + 1)$ でゆるされる最小の値 $\eta = 0.15$

臨界点の上と下の強度比から

$$\frac{\chi_0}{\chi_{\pm}} = 3.6 \pm 0.4 \quad (19)$$

が得られる。 r , r' , χ_0 / χ_{\pm} の値は、状態方程式の測定から得られる値^{8), 9)}

$r = 1.18 \pm 0.08$, $r' = 1.12$, $\chi_0 / \chi_{\pm} = 3.7$ と consistent である。

次に、時間相関関数、すなわちスペクトルの測定結果について述べる。⁶⁾ まず、第2図に相関関数の測定結果の一例を示す。これは、この実験のために製作した、160チャ

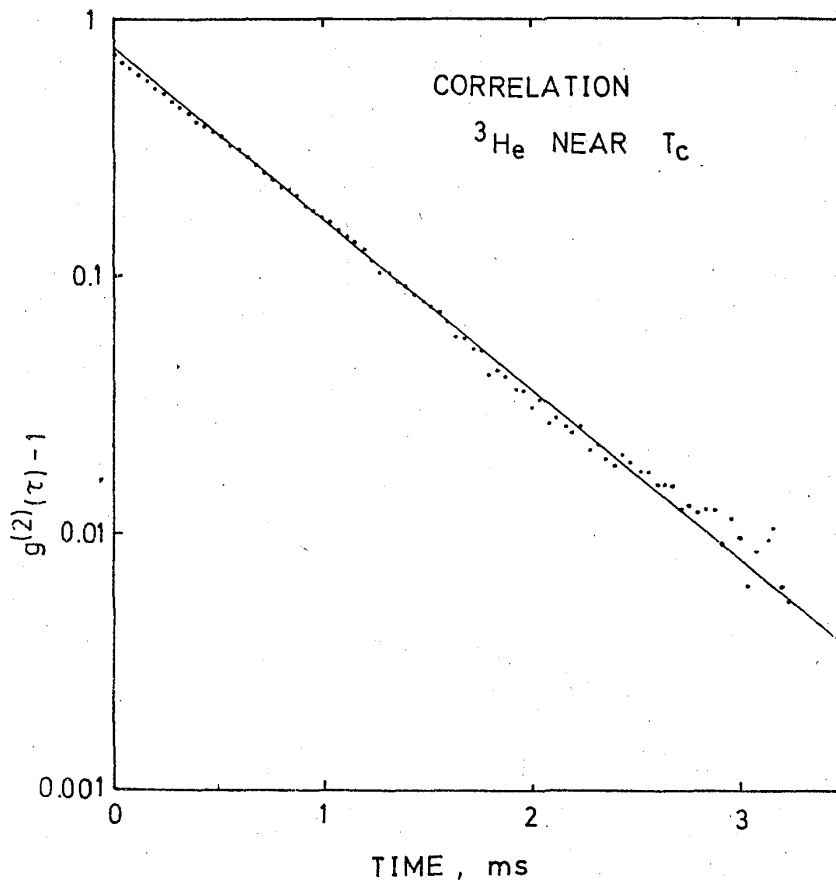


Fig. 2

ンネルの相関器¹⁰⁾を用いて測定したものである。 T_c 上 $\epsilon = 2.3 \times 10^{-5}$ で, 測定を行ない, (16)式右辺の第1項に当る部分を差し引いて, 第2項に当る部分を示したものである。ここでわかるように, 2桁にわたって, 相関関数の単一指数関数による記述が正しい。このような緩和関数から $\tau_R \equiv 1/(2\Gamma)$ の値が, 各温度で正確に決定される。得られた τ_R の値を Kawasaki の式に fit する前に, back ground の寄与を差し引く必要がある。(9)式において, A_r は, Kerrisk and Keller の測定値がある。¹¹⁾

C_p は, 熱力学の等式

$$C_p = C_v + \frac{T}{\rho} \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_\rho^2 K_T \quad (20)$$

を用いて, Brown and Meyer¹²⁾ の C_v の値, Wallace and Meyer⁸⁾ の K_T , $(\partial p/\partial T)_\rho$ より計算できる。これらにより計算した Γ_r の値を測定値から差しひいて, Γ_s を求め, これを Kawasaki の式(11)に fit させた結果を第3図に示す。この fitting

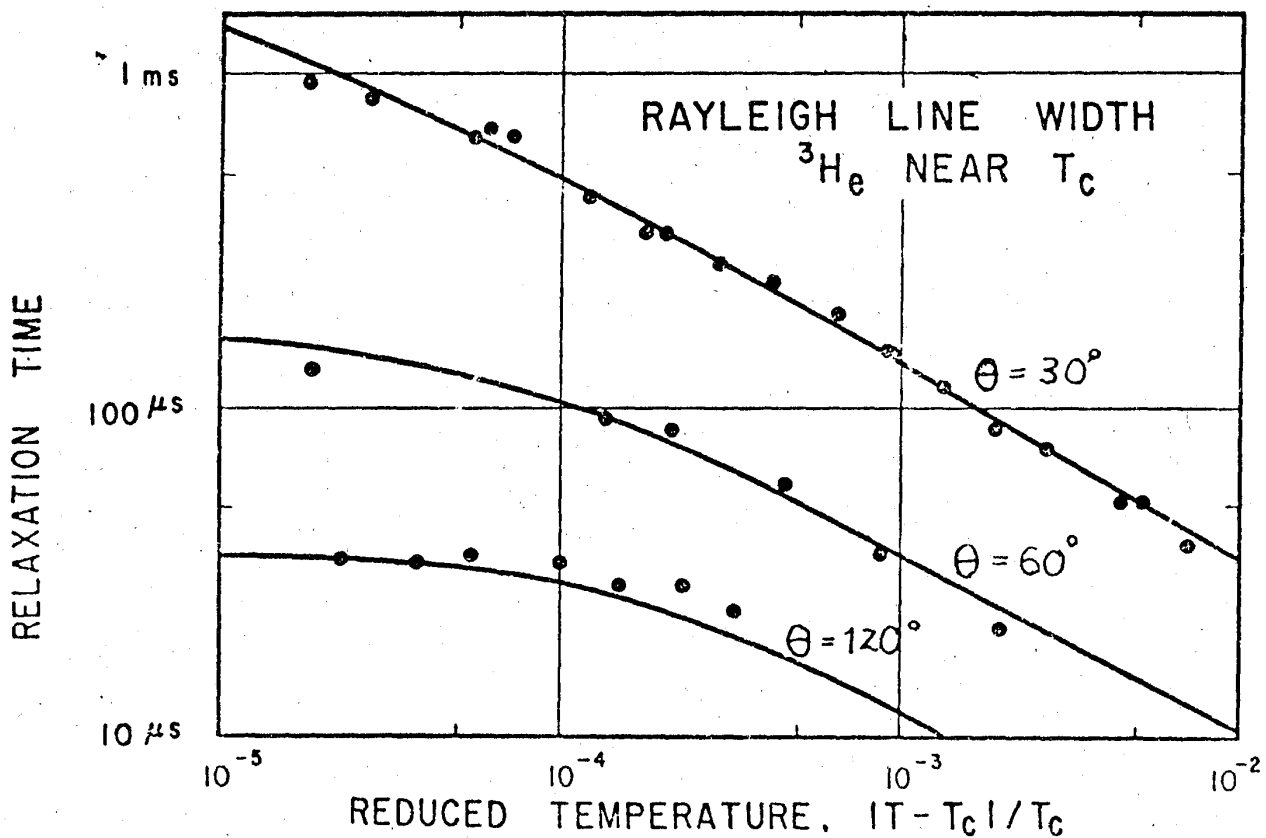


Fig. 3

より, dynamical な性質は, Kawasaki の式によって, 良く表わされる事がわかる。

fitting の結果より次の値が求まる。

$$\xi_0 = 2.4 \pm 1 \text{ \AA}$$

$$\nu = 0.58 \pm 0.05 \quad (T > T_c) \quad (21)$$

$$\eta^* = 19 \pm 4 \mu\text{P}$$

η_r の値は、熱伝導度 A_r より、気体分子運動論の関係式 $\eta_r = 4 k_B A_r / 15m$ を用いて、 $\eta_r = 15 \mu\text{P}$ と計算される。ここで、 k_B はボルツマン定数、 m はヘリウムの質量である。これより、誤差の範囲で $\eta^* \doteq \eta_r$ といえて、Kawasaki の式の正当性がこの点からも言える。 ξ_0 及び ν の値も、誤差の範囲で、強度の測定結果 (18) と consistent である。

統計性については、第 1 表に示すように、 $T \ll \tau_R$ の条件で測定された分布 $P'(T, n)$

表 1 STATISTICS

n	$P'(T, n)$	$P'(T, n) / P'(T, n-1)$
0	94.0	
1	73.0	0.776
2	55.5	0.761
3	42.0	0.756
4	32.0	0.761
5	23.8	0.756
6	18.0	0.754
7	14.0	0.777
8	10.8	0.772
9	8.1	0.730

Gaussian $P'(T, n) / P'(T, n-1) = 0.76$

(' は規格化されていない事を示す) が、(17)式で良く記述される事から、Gaussian であるといえる。なお、この測定は、第 2 図と同じ温度で行った。

今まで行なわれた液相-気相臨界点近傍の光散乱によるデータをまとめると、第 2 表のようになる。この表からわかるように、最も量子性の大きい ^3He についても、実験

第2表

	SF ₆	CO ₂
$r(T > T_c)$		1.219 ± 0.01 ¹⁶⁾ 1.17 ± 0.03 ¹⁷⁾
$r'(T > T_c)$		1.17 ± 0.03 ¹⁷⁾
$\nu(T > T_c)$	0.61 ± 0.04 ¹³⁾ 0.67 ± 0.02 ¹⁴⁾	0.633 ± 0.01 ¹⁶⁾ 0.60 ¹⁷⁾
$\nu'(T < T_c)$		
$\xi_0(T > T_c)$	1.5 ± 0.23 ¹⁴⁾ A°	1.50 ± 0.09 A° ¹⁶⁾
$\xi_{\pm}(T < T_c)$		
$\frac{\chi_0}{\chi_{\pm}}$		
$\eta^*(\mu P)$		
$\eta r(\mu P)$	287 ¹⁵⁾	350 ¹⁶⁾

誤差の範囲で、古典流体と比べて明瞭な差があるとはいいがたい。熱力学的な状態方程式の研究において、静的な問題については、すでに、量子性が臨界揺動に影響をおよぼさない事が推察されていたが、我々の研究によって、動的な面についても、この歴史的

Xe	⁴ He	³ He
1.21 ± 0.03 ¹⁸⁾	1.31 ± 0.02 ²⁰⁾ 1.18 ²¹⁾	1.14 ± 0.05 ⁶⁾
1.21 ± 0.02 ¹⁸⁾	1.32 ± 0.02 ²⁰⁾ 1.18 ²²⁾	1.15 ± 0.05 ⁶⁾
0.58 ± 0.05 ¹⁸⁾ 0.64 ± 0.02 ¹⁹⁾	0.66 ± 0.02 ²⁰⁾ 0.543 ± 0.046 ⁴⁾	0.59 ± 0.04 ⁶⁾ 0.58 ± 0.05 ⁶⁾
0.57 ± 0.05 ¹⁸⁾	0.68 ± 0.02 ²⁰⁾	0.67 ± 0.1 ⁶⁾
$3.0 \pm 0.1 \text{ A}^\circ$ ¹⁸⁾	$4.2 \pm 0.6 \text{ A}^\circ$ ²⁰⁾ $3.6 \pm 0.78 \text{ A}^\circ$ ⁴⁾	$4.6 \pm 1.9 \text{ A}^\circ$ ⁶⁾ $2.4 \pm 1 \text{ A}^\circ$ ⁶⁾
$1.8 \pm 0.2 \text{ A}^\circ$ ¹⁸⁾	$2.6 \pm 0.7 \text{ A}^\circ$ ²⁰⁾	$4.0 \pm 3 \text{ A}^\circ$ ⁶⁾
4.1 ± 0.2 ¹⁸⁾	3.6 ± 0.4 ²⁰⁾	3.6 ± 0.4 ⁶⁾
573 ± 26 ¹⁹⁾	21.5 ± 3.6 ⁴⁾	19 ± 4 ⁶⁾
520 ± 50 ¹⁹⁾	21 ± 2 ⁴⁾	15 ⁶⁾

に重要な問題について、量子効果の影響が実験誤差の範囲でみとめられないと結論できる。

ラムダ移転, Tri-critical Point

ラムダ移転点近傍では通常の圧力ではレーリー散乱光の増大はみられないが, 20気圧以上になると, K_T の臨界異常が観測可能になり, 光散乱強度の発散的増大がみられる。ラムダ点近傍の光散乱の実験について, LT13で4つの報告がある。²³⁾ 強度は, 熱力学的測定で得られる C_p と C_v の値でほぼ説明されうるが, $100\mu K$ 以内に入ると, critical region になり, ずれがみられる。興味あるのは, ラムダ点で予想される critical region での dispersion $\Gamma \sim K^{3/2}$ がスペクトルに現われるかどうかであるが, この点については, 装置の分解能が悪いために, まだ確定的なことは言えていない。これらは今後の問題であろう。

Tri-critical point については, 強度の温度変化の測定が報告されている。²⁴⁾ 著者自身も題名に述べているように, preliminary な結果であって, 今後スペクトルの測定等興味深い。

参 考 文 献

- 1) M. E. Fisher : J. Math. Phys. 5 944(1964)
- 2) H. L. Swinney, D. L. Henry, and H. Z. Cummins : J. Physique 33 C1-81 (1972)
- 3) K. Kawasaki : Ann. Phys. (NY), 61 1(1970), Phys. Rev. A. 1 1950 (1970)
- 4) K. Ohbayashi and A. Ikushima : J. Low Temp. 15(1974) in print.
- 5) 例えば, J. R. Klauder and E. C. G. Sudershan : Fundamental of Quantum Optics, W. A. Benjamin, INC., New York, Amsterdam, 1968
- 6) K. Ohbayashi and A. Ikushima : Physics Letters A(in print)
J. Low Temp Physics (to be submitted)
- 7) M. F. Fisher : Phys. Rev. 180 594(1972)
- 8) B. Wallace, Jr. and H. Meyer : Phys. Rev. A 2 63(1970)
- 9) C. E. Chase and G. O. Zimmerman : J. Low. Temp. Phys. 11 551

(1973)

- 10) K. Ohbayashi and A. Ikushima : Japan. J. appl. Phys. to be submitted
- 11) J. E. Kerrisk and W. E. Keller : Phys. Rev. 177 (1969) 341
- 12) G. R. Brown and H. Meyer : Phys. Rev. A 6 (1972) 364
- 13) T. K. Lim, H. L. Swinney, K. H. Langley, and T. A. Kachnowski : Phys. Rev. Letters 27 1776 (1971)
- 14) V. G. Puglielli and N. C. Foord, Jr., : Phys. Rev. Letters, 25 143 (1970)
- 15) E. S. Wu and W. W. Webb : J. Physique 33 C1-149 (1972)
- 16) D. S. Cannell and J. H. Lunacek : Phys. Rev. Letters 27 841 (1971)
- 17) J. A. White and B. S. Maccabee : Phys. Rev. Letters 26 1468 (1971)
- 18) I. W. Smith, M. Giglio and G. B. Benedek, Phys. Rev. Letters 27 1556 (1971)
- 19) H. L. Swinney, D. L. Henry, and H. 2. Cummins, J. Physique 33 C1-81 (1972)
- 20) S. Kagoshima, K. Ohbayashi and A. Ikushima, J. Low Temp. Phys. 11 765 (1973)
- 21) 富永昭, 檜原良正 : 本研究会報告.
- 22) A. Tominaga and Y. Narahara : Phys. Letters 41 A 353 (1972)
- 23) C. J. Palin, W. F. Vinen and J. M. Vaughan : Proceeding of LT13
G. Winterling, F. S. Holmes and T. J. Greytal : ibid
J. M. Vaughan, W. F. Vinen and C. J. Palin : ibid
W. F. Vinen, C. J. Palin and J. M. Vaughan, ibid
- 24) D. R. Watts, W. I. Goldberg, L. D. Jackel, and W. W. Webb.
J. de Physique 33 C1-155 (1972)